# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

10-022073

(43) Date of publication of application: 23.01.1998

(51)Int.Cl.

H05B 33/14 C09K 11/06

G09F 9/30

(21)Application number: 08-192805

(71)Applicant: IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22) Date of filing:

03.07.1996

(72)Inventor: SUZUKI ICHIRO

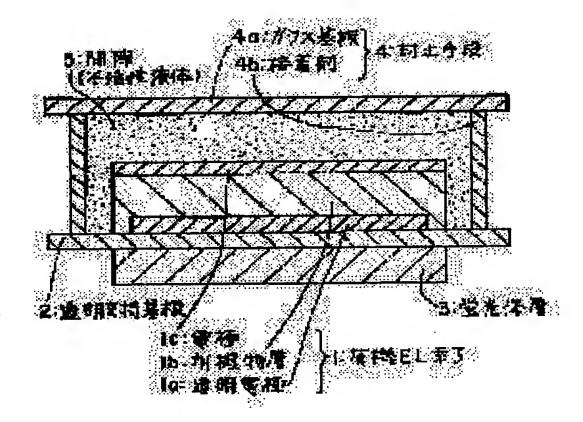
**SAKAEDA NOBORU** 

# (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent device having high brightness, high efficiency, and long life.

SOLUTION: In an organic electroluminescent device which includes a support substrate 2, an organic electroluminescent element 1 in which an organic material layer 1b having at least a light emitting layer is sandwiched between two electrodes 1a, 1c, and a phosphor layer 3 absorbing light emitted from the organic electroluminescent element 1 to emit visible fluorescence, the organic electroluminescent element 1 is a green-emitting organic electroluminescent element emitting green light, and the phosphor layer 3 emits fluorescence from orange to red and has an energy conversion efficiency of 30% or more.



## (19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

## (11)特許出顧公開番号

# 特開平10-22073

(43)公開日 平成10年(1998) 1月23日

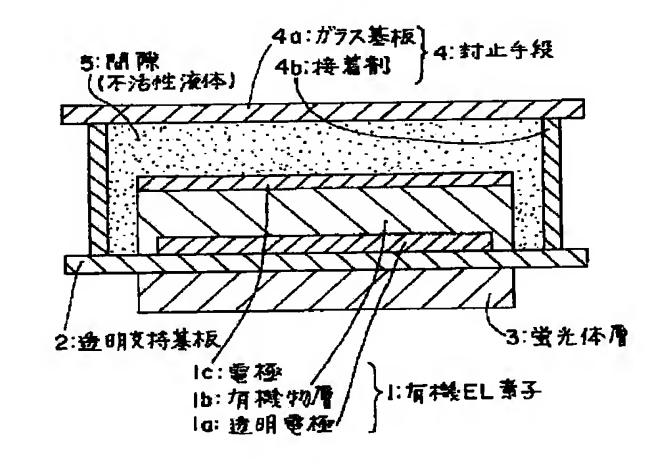
(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号 片	庁内整理番号	F I 技術表示箇所				
H05B 33/14			H05B 33	14			
C09K 11/06			C 0 9 K 11/06		Z		
G09F 9/30	365		G09F 9/30		3 6 5 A		
			馨查請求	未請求	請求項の数 5	FD	(全 12 頁)
(21) 出願番号	<b>特顯平8-192805</b>		(71) 出廣人	0001836	46 <b>釜株式会社</b>		
(22) 出頭日	平成8年(1996)7月3		東京都	千代田区丸の内	3丁目1	番1号	
			(72)発明者	鈴木 -	一郎		
				千葉県社	軸ヶ浦市上泉128 内	10番地	出光與産株
			(72)発明者	<b>染田</b>			
					曲ヶ浦市上泉128	30番地	出光興産株
				式会社	内		
			(74)代理人	弁理士	渡辺 喜平	外1名	i)

# (54) 【発明の名称】 有機EL発光装置

# (57)【要約】

【課題】 高輝度, 高効率および長寿命の有機EL発光 装置を提供する。

【解決手段】 支持基板2と、二つの電極1a,1cとの間に、少なくとも発光層を有する有機物層1bを挟持した有機EL素子1と、この有機EL素子からの発光を吸収して、可視光の蛍光を発光する蛍光体層3とを備えた有機EL発光装置において、前記有機EL素子1が、緑色系発光をする緑色系発光有機EL素子であり、かつ前記蛍光体層3が、橙色系~赤色系の蛍光を発光するものであるとともに、そのエネルギー変換効率が30%以上であることを特徴とする有機EL発光装置。



### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 支持基板と、二つの電極との間に、少なくとも発光層を有する有機物層を挟持した有機EL素子と、この有機EL素子からの発光を吸収して、可視光の蛍光を発光する蛍光体層とを備えた有機EL発光装置において、

前記有機EL素子が、緑色系発光をする緑色系発光有機 EL素子であり、かつ前記蛍光体層が、橙色系~赤色系 の蛍光を発光するものであるとともに、そのエネルギー 変換効率が30%以上であることを特徴とする有機EL 10 発光装置。

【請求項2】 前記蛍光体層が、吸収波長440nm~510nmの間にOD (Optical Density) 1. 0以上の吸収を有するものであり、かつ、緑色蛍光色素を含有することを特徴とする請求項1記載の有機EL発光装置。

【請求項3】 前記緑色系発光有機EL素子の発光層が、金属キレートオキサノイド系化合物および/またはキナクリドン系化合物を発光材料として含有するものであることを特徴とする請求項1または請求項2記載の有機EL発光装置。

【請求項4】 前記蛍光体層が、ローダミン系、シアニン系、およびピリジン系からなる群から選ばれる一以上の色素を含有するものであることを特徴とする請求項1~3のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項5】 請求項1~4のいずれか1項記載の有機 EL発光装置と前記緑色系発光有機EL素子とからなる ことを特徴とする多色発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機EL発光装置に関する。さらに詳しくは、表示材料一般に好適に用いられる、高輝度、高効率、長寿命の有機EL発光装置に関する。

## [0002]

【従来の技術】エレクトロルミネッセンス素子(以下E 上素子と略記する)は、自発光のため視認性が高く、また完全固体のために耐衝撃性に優れるという特徴を有している。現在、有機、無機化合物を発光層に用いた様々なE L素子が提案され実用化が試みられている。この実 40 用化の一つとしてE L素子を用いた発光装置を挙げることができる。このような有機E L素子を用いた発光装置の持つ問題点としては、赤色発光素子の低効率、短寿命が挙げられる。赤色発光素子の例としては、青色系へ緑色系発光の無機 E L素子と橙系~赤色系蛍光体とを組み合わせたもの(特開昭-60-220597号公報、特開平02-158091号公報、特開平07-1211 21号公報)が挙げられる。しかしながら無機E L素子は印加電圧が高く、駆動回路が複雑になるといった問題点があるほか、効率、輝度も不十分である。また、最近 50

赤色系発光有機EL素子が報告されている(特開平07-90254号公報)。

#### [0003]

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記赤色系有機EL素子も、効率の面では必ずしも十分に満足し得るものではなかった。本発明は、上記の問題に鑑みなされたものであり、高輝度、高効率および長寿命の有機EL 発光装置を提供することを目的とする。

#### [0004]

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明によれば、支持基板と、二つの電極との間に、少なくとも発光層を有する有機物層を挟持した有機 E L 素子と、この有機 E L 素子からの発光を吸収して、可視光の蛍光を発光する蛍光体層とを備えた有機 E L 発光装置において、前記有機 E L 素子が、緑色系発光をする緑色系発光有機 E L 素子であり、かつ前記蛍光体層が、橙色系~赤色系の蛍光を発光するものであるとともに、そのエネルギー変換効率が30%以上であることを特徴とする有機 E L 発光装置が提供される。

【0005】また、その好ましい態様として、前記蛍光体層が、吸収波長440nm~510nmの間にOD (Optical Density) 1.0以上の吸収を有するものであり、かつ、緑色蛍光色素を含有することを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0006】また、その好ましい態様として、前記緑色 系発光有機EL素子の発光層が、金属キレートオキサノイド系化合物および/またはキナクリドン系化合物を発光材料として含有するものであることを特徴とする有機 EL発光装置が提供される。

【0007】また、その好ましい態様として、前記蛍光体層が、ローダミン系、シアニン系、およびピリジン系からなる群から選ばれる一以上の色素を含有するものであることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。 【0008】さらに、その好ましい態様として、前記有機EL発光装置と前記緑色系発光有機EL素子とからなることを特徴とする多色発光装置が提供される。

#### [0009]

【発明の実施の形態】以下、本発明の有機EL発光装置 およびその応用例としての多色発光装置の実施の形態を 説明する。本発明の有機EL発光装置としては、緑色系 発光有機EL素子の緑色系発光が減衰、散乱されず、効 率よく蛍光体層に吸収され、かつ、発光した可視光の蛍 光が減衰、、散乱されず外部へ取り出すことができる構 成であることが必要である。この観点からすると、具体 的には、図1に示す構成を挙げることができる。すなわ ち、透明支持基板2の一面上に透明電極1aと電極1c との間に少なくとも発光層を有する有機物層1bを挟持 した緑色系発光有機EL素子1を形成し、かつ透明支持 基板2の他面上に、橙色系~赤色系の蛍光を発光する蛍 光体層3を形成し、さらに有機EL素子1の上方をガラ

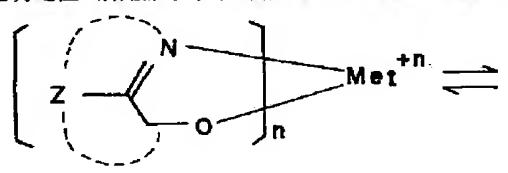
ス基板4 a および接着剤4 b からなる封止手段4で封止 し、間隙5を不活性液体で充填した構成を挙げることが できる。なお、蛍光体による有機EL素子の発光色の変 換は、有機EL素子の発光波長よりも長波長の発光色で あればよく、以下の赤色、橙色に限定されるものではな い。さらに、図2に示すように、上記構成に加えて、赤 色カラーフィルタ6〔R〕、緑色カラーフィルタ6

[G]または橙色カラーフィルタ6〔O〕と透明支持基 板2との間にそれぞれ赤色変換系蛍光体3〔R〕または 橙色変換系蛍光体層3〔0〕を配置することにより、そ 10 れぞれの蛍光体3〔R〕、3〔O〕から発光する赤色 光、橙色光を色調整して色純度を高めることができる。 また、図2に示すように、前記蛍光体層3(3[R], 3 [O]) の少なくとも間隙に、ブラックマトリックス 7を配置して、有機EL素子1の発光の漏れ光を遮断し て多色発光の一層の視認性を髙めることもできる。以 下、本発明の有機EL発光装置を各構成ごとに具体的に 説明する。なお、との構成要素に用いられる材料は、必 要最小限のものを記載するものであり、これに限定され るものではない。

#### 【0010】1 有機EL素子

本発明に用いられる有機EL素子としては、青緑色から 黄緑色まで発光するものであることが好ましく、この発 光を得るためには、たとえば以下の構造を挙げることが でりできる。基本的には、二つの電極(透明電極(陽 極)と電極(陰極))の間に有機物層の発光層を挟持し た構造としてこれに応じた階層を介在させればよい。具 体的には、

- (1)透明電極(陽極)/発光層/電極(陰極)
- (2)透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電極 (陰極)
- (3)透明電極(陽極)/発光層/電子注入層/電極 \*



【0014】(式中、Meは金属を表わし、nは1~3 の整数であり、Zはそれぞれ独立して、少なくとも2個 の縮合芳香族環を有する核を完成している原子を示 す。)

上記のととか明らかなように金属は一価、二価または三 価の金属である。金属は、たとえばリチウム、ナトリウ ム、カリウムなどのアルカリ金属、マグネシウムもしく はカルシウム等のアルカリ土類金属、またはホウ素もし くはアルミニウム等の金属であることができる。一般的 には、有用な金属キレート化合物であることが知られて いる一価、二価、または三価の金属を用いることができ る。 Zは、少なくとも2個の縮合芳香族環(少なくとも 50 鉛

\*(陰極)

(4)透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電子注 入層/電極(陰極)

などを挙げることができる。

【0011】(1)透明電極(陽極)

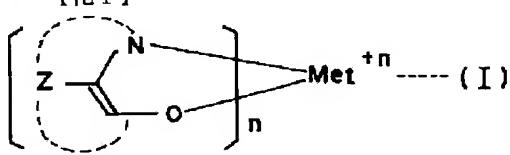
陽極としては、仕事関数の大きい(4 e V以上)金属. 合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物 質とするものが好ましく用いられる。このような電極物 質の具体例としては、Au等の金属、CuI, ITO, Sn〇、、Zn〇等の導電性透明材料が挙げられる。陽 極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等 の方法で、薄膜を形成させることにより作製することが できる。とのように発光層からの発光を陽極から取り出 す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きく することが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、 通常 $10nm\sim1\mu m$ 、 $10\sim200nm$ の範囲が好ま しい。なお、本発明においては、陽極として基板電極を 用いているが、基板電極を陰極として用いてもよい。

【0012】(2)発光層 20

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体 的には所望の色調により種々の化合物を用いることがで きる。本発明の緑色系発光有機EL素子の形成に使用す るものとして特に好ましいのは、オキシンのキレート (一般的には、「8-キノリノール」または「8-ヒド ロキシキノリン」とも称する) を初めとする金属キレー トオキサノイド化合物である。このような化合物は性能 が高い。具体的には、容易に薄膜に成膜できる使用でき るオキサノイド化合物として、以下の構造式(一般式 30 1)を満足するものを挙げることができる。

[0013]

[化1]



1個はアゾールまたはアジン環である)を含有する複素 40 環核である。必要におうじて、脂肪族環と縮合芳香族環 を含めたさらなる環と縮合できる。機能を向上すること なく分子の嵩が増加するのをを避けるために、環原子の 数は18以下に維持することが好ましい。以下、有用な キレート化オキサノイド化合物を列挙する。

CO-1 アルミニウムトリソキシン [トリス(8-キ ノリノール)アルミニウムとも称される]

CO-2 マグネシウムビオキシン [ビス(8-キノリ ノール) マグネシウムとも称される]

CO-3 ビス [ベンゾ { f } -8-キノリノール] 亜

5

CO-4 アルミニウムトリス [5-メチルオキシン] [トリス (5-メチル-8-キノリノール) アルミニウムとも称される]

CO-5 インジウムトリソキシン [トリス(8-キノリノール) インジウムとも称される]

CO-6 リチウムオキシン [8-キノリノールリチウムとも称される]

CO-7 ガリウムトリス(5-クロロオキシン)[トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウムとも称される]

CO-8 カルシウムピス (5-クロロオキシン) [ビス (5-クロロ-8-キノリノール) カルシウムとも称される]

CO-9 ポリ [亜鉛 (II) -ピス (8-ヒドロキシー 5-キノリニル) メタン]

なおこれらの金属キレートオキサノイド化合物は、単独 で発光材料として用いてもよいが、発光効率、発光の色 純度を高めるために他の有機化合物と混合して用いると\*

\* ともできる。具体的な例として、特開平05-7077 3号公報記載のキナクリドン化合物(一般式II)または キナゾリン化合物(一般式III) を [化2] に示す。 【0015】

【化2】

$$\begin{array}{c|c} R_1 & & \\ \hline \\ R_2 & & \\ \hline \end{array}$$

 $\begin{array}{c|c}
R_1 & & & \\
\hline
R_2 & & & \\
\hline
\end{array}$   $\begin{array}{c|c}
N & & \\
\hline
\end{array}$   $\begin{array}{c|c}
R_3 & & \\
\hline
\end{array}$   $\begin{array}{c|c}
R_4 & & \\
\hline
\end{array}$ 

[0016]

[化3]

10

H H E 表 N R I N R 4 は 互いに独立して水栗原子
ハロゲン原子、アルギル基もしくは、アルコキシ基、又はRitR2 もしくは
R3tR4 が 互いに 結合した ベンセ"ン環もし(は

を表わし、R5 はアルキル基を表わる。)

【0017】以下、有用な四つのキナクリドン化合物を 【0018】 [化4] に、また一つのキナゾリン化合物を [化5] に 【化4】 それぞれ具体的に示す。

【0020】上記前記材料を用いて、発光層を形成する 方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法 等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特 に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜 とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄 膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化 され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜 は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは疑 集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相 違により区分することができる。また、特開昭57-5 1781号公報に開示されているように、樹脂等の結着 剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これ をスピンコート法等により薄膜化することによっても、 発光層を形成することができる。このようにして、形成 される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に 応じて適宜選択することができるた、通常5nm~5 µ mの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機 50

能を併せ持つものである。すなわち、①注入機能;電界 印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入すること ができ、陰極または電子注入層より電子を注入すること ができる機能、②輸送機能;注入した電荷(電子と正 30 孔)を電解の力で移動させる機能、③発光機能;電子と 正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機 能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入 されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移 動度であらわされる輸送能に大小があてもよいが、どち らか一方の電荷を移動することが好ましい。

## 【0021】(3)正孔注入層

必要に応じて設けられる正孔注入層の材料としては、従来より光伝導材料の正孔注入材料として慣用されているものや有機EL素子の正孔注入層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。正孔注入層の材料は、正孔の注入、電子の障壁性のいづれかを有するものであり、有機物あるいは無機物のどちらでもよい。

【0022】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オキサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ボリアリールアルカン誘導体(米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細

書、特公昭45-555号公報、同51-10983号 公報、特開昭51-93224号公報、同55-171 05号公報、同56-4148号公報、同55-108 667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体およびピ ラゾロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細 書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-8 8064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同5 6-80051号公報、同56-88141号公報、同 10 報、同61-98353号公報、同63-295695 57-45545号公報、同54-112637号公 報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジ アミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細 書、特公昭51-10105号公報、同46-3712 号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53 435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体 (米国特許第3,567,450号明細書、同第3,1 80,703号明細書、同第3,240,597号明細 書、同第3,658,520号明細書、同第4,23 2, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細 書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-3 5702号公報、同39-27577号公報、特開昭5 5-144250号公報、同56-119132号公 報、同56-22437号公報、西独特許第1,11 0,518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導 体(米国特許第3,526,501号明細書等参照)、 オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号 明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体 (特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノ 30 メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4, ン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、 ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明 細書、特開昭54-59143号公報、同55-520 63号公報、同55-52064号公報、同55-46 760号公報、同55-85495号公報、同57-1 1350号公報、同57-148749号公報、特開平 2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体 (特開昭61-210363号公報、同61-2284 51号公報、同61-14642号公報、同61-72 6674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60 -94462号公報、同60-174749号公報、同 60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体 (米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラ ン系 (特開平2-204996号公報)、アニリン系共 重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリ ゴマー (特にチオフェンオリゴマー) 等を挙げることが できる。

【0023】正孔注入層の材料としては上記のものを使 用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭6 3-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第 三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物(米国特 許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-270 33号公報、同54-58445号公報、同54-14 9634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同5 6-119132号公報、同61-295558号公 号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用い ることが好ましい。

10

【0024】上記ポルフィリン化合物の代表例として は、ポルフィン、1,10,15,20-テトラフェニ ル-21H, 23H-ポルフィン銅(II)、1, 10, 15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフ ィン亜鉛 (II)、5,10,15,20-テトラキス (ペンタフルオロフェニル) -21H, 23H-ポルフ ィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウム 20 フタロシアニンクロリド、フタロシアニン(無金属)、 ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシア ニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛 フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロ シアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチ ルフタロシアニン等を挙げることができる。 【0025】また、前記芳香族第三級アミン化合物およ びスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N, N', N' - $\mathcal{F}$ - $\mathcal{$ 

ニル、N, N'ージフェニルーN, N'ービスー(3 -4'-ジアミン(以下TPDと略記する)、2,2-ビ ス (4-ジーp-トリルアミノフェニル) プロパン、 1, 1-ビス (4-ジーp-トリルアミノフェニル)シ クロヘキサン、N, N, N', N'-テトラーロートリ ルー4, 4'ージアミノフェニル、1,1ービス(4-ジーpートリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロ ヘキサン、ビス(4 - ジメチルアミノ-2 - メチルフェ ニル) フェニルメタン、ビス (4-ジーp-トリルアミ ノフェニル) フェニルメタン、N, N' -ジフェニル-255号公報、同62-47646号公報、同62-3 40 N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジ アミノビフェニル、N, N, N', N'-テトラフェニ ルー4、4'ージアミノフェニルエーテル、4、4'ー ビス (ジフェニルアミノ) クオードリフェニル、N, N. N-トリ (p-トリル) アミン、4-(ジ-p-ト リルアミノ) -4' - [4 (ジーp-トリルアミノ) ス チリル] スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル) ベンゼン、3-メトキシー 4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5,061,569 50 号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有す

る、例えば、4,4'ービス[N-(1ーナフチル)ー N-フェニルアミノ] ピフェニル (以下NPDと略記す る)、また、特開平4-308688号公報で記載され ているトリフェニルアミンユニットが3つスターバース ト型に連結された4, 4', 4''-トリス[N-(3-**メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニル** アミン (以下MTDATAと略記する) 等を挙げること ができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香 族ジメチリディン系化合物p型-Si.p型SiC等の 無機化合物も正孔注入層の材料として使用することがで 10 きる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸 着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の 方法により薄膜化することにより形成することができ る。正孔注入層としての膜厚は、特に制限されないが、 通常は5nm~5μmである。との正孔注入層は、上述 した材料の1種類または2種類以上からなる一層構造で あってもよいし、同一組成または異種組成の複数層から なる複数構造であってもよい。

#### 【0026】(4)電子注入層

必要に応じて設けられる電子注入層は、陰極より注入さ 20 れた電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、 その材料としては従来公知の化合物の中から任意のもの を選択して用いることができる。具体例としては、ニト 口置換フルオレン誘導体、特開昭57-149259号 公報、同58-55450号公報、同63-10406 1号公報等に開示されているアントラキノジメタン誘導 体、Polymer Preprints, Japan Vol.37. No.3(1988) p. 681 等に記載されているジフェニルキノン誘導体、チオ ピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素 環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、Japanese 30 Journal of Applied Physics, 27, L269(1988)、特開昭 60-696657号公報、同61-143764号公 報、同61-148159号公報等に開示されているフ レオレニリデンメタン誘導体、特開昭61-22515 1号公報、同61-233750号公報等に開示されて いるアントラキノジメタンおよびアントロン誘導体、Ap pl. Phys. Lett., 55, 15. 1489 や前述の第38回応用 物理学関係連合会で浜田らによって開示されたオキサジ アゾール誘導体、特開昭59-194393号公報に開 示されている一連の電子伝達性化合物が挙げられる。な お、特開昭59-194393号方法では前記電子伝達 性化合物を発光層の材料として開示しているが、本発明 者の検討によれば、電子注入層の材料としても用いると とができることが明らかとなった。また、上記オキサジ アゾール環の酸素原子とイオウ原子に置換したチアゾー ル誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン 環を有したキノキサリン誘導体を挙げることができる。 また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、具体的に は、トリス (8-キノリノール) アルミニウム (以下A 1 q と略記する)、トリス(5,7-ジブロモー8-キ 50

ノリノール) アルミニウム、トリス (2ーメチルー8ー キノリノール) アルミニウム、トリス (5-メチル-8 -キノリノール) アルミニウム、ビス(8-キノリノー ル) 亜鉛(以下 Znqと略記する)、これらの金属錯体 の中心金属が、In, Mg, Cu, Ca, Sn, Gaま たはPbに置き代わった金属錯体も電子注入層の材料と して用いることができる。その他に、メタルフリーもし くはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアル キル基、スルホン酸基等で置換されているものも好まし い。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラ ジン誘導体も、電子注入材料として用いることができ る。また、正孔注入層と同様に、n型-Si、n型-S i C等の無機半導体も用いることができる。電子注入層 は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコー ト法、キャスト法、LB法の公知の方法により薄膜化す るととにより形成することができる。電子注入層として の膜厚は、特に制限されないが、通常は5 n m~5 μ m である。この電子注入層は上述した材料の1種類または 2種類以上からなる一層構造であってもよいし、同一組 成または異種組成の複数層からなる複数構造であっても よい。

### [0027](5)電極(陰極)

陰極としては、仕事関数の小さい(4 e V以下)金属 (これを電子注入性金属と称する), 合金電気伝導性化 合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用い られる。このような電極物質の具体例としては、ナトリ ウム、ナトリウムーカリウム合金、マグネシウム、リチ ウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合 物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム **/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム** (Al, O)、インジウム、リチウム/アルミニウ ム、希土類金属などが挙げられる。好ましくは、電子注 入性および電極としての酸化等に対する耐久性を考える と、電子注入性金属とこれにより仕事関数の値が大きく 安定な金属である第二金属との混合物が挙げられる。例 えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミ ニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アル ミニウム/酸化アルミニウム(A1,〇。)、リチウム /アルミニウムなどを挙げることができる。この陰極 40 は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方 法により、薄膜を形成させることにより、作製すること ができる。有機EL素子を発光体とする多色発光装置で は、通常、陽極のパターンラインに対して垂直の陰極パ ターンラインを形成する。陰極は、通常発光層等の有機 化合物の薄膜上に形成するため、ウェットエッチングを 行なうフォトリソグラフィー法では有機化合物の劣化が 激しく、安定性がない。従って、通常は、上記材料の蒸 着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介して陰 極のバターンを形成する。ととで、陰電極としてのシー ト抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10 n

m~1μm、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、このEL素子においては、該陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよく好都合である。

## 【0028】(6)有機EL素子の作製(例)

以上例示した材料および方法により発光層、陽極、必要 に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を 形成し、さらに陰極を形成することにより、有機EL素 子を作製することができる。以下に基板上に陽極/正孔 10 注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構 成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基 板上に、陽極材料からなる薄膜を1μm以下、好ましく は10~200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やス パッタリング等の方法により形成して、陽極を作製す る。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入 層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート 法、キャスト法、LB法等の方法により行なうことがで きるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発 生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成すること 20 が好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場 合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入層の材 料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等 により異なるが、一般に蒸着源温度50~450℃、真 空度10-7~10-3 torr、蒸着速度0.01~50 nm/sec、基板温度-50~300℃、膜厚5nm ~5 μmの範囲で適宜選択することが好ましい。次に正 孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有 機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、ス ピンコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料 30 を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得ら れやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、 真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法 により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用す る化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ様 な条件範囲の中から選択することができる。次に、この 発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と 同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成す ることが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と 同様条件範囲から選択することができる。

【0029】最後に、陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5~40Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、

14

発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。 【0030】2 透明支持基板

本発明に用いられる透明支持基板としては、たとえば、ガラス板、ブラスチック板(ポリカーボーネイト、アクリル等)、プラスチックフィルム(ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルスルフィド等)、石英板等の透明な(可視光透過率50%以上)材料であることが好ましい。また、板厚としては、この上に積層する薄厚ガラス板にそり、ゆがみを生じさせることがなく、補強できる程度の支持基板であるならば、特に制限はない。

### 【0031】3 蛍光体層

#### (1) 蛍光体層

本発明に用いられる蛍光体層としては、例えば、蛍光色素およびバインダー樹脂、または蛍光色素からなり、蛍光色素または顔料を樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

#### O蛍光色素

橙色~赤色の発光に変換する色素については、例えば、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン110等のローダミン系色素、他にオキサジン系色素、シアニン系色素、ビリジン系色素等を挙げることができる。しかし、これらの色素は510nmよりも短波長側に強い吸収を持たないため緑色系発光有機EL素子の発光の短波長成分を完全に吸収することができない。そのため橙色~赤色系発光への変換効率は低いものとなる。本発明では、この問題点を解決するために440nm~510nmにモル吸光係数が1×10°~1×10°の吸収を持つ緑色系蛍光色素を上記の橙色~赤色系蛍光色素と混合して440nm~510nmにOD1.0以上の吸収を持つ蛍光体層を用いた。ODとモル吸光係数の関係は以下の式で表わされる。

OD=モル吸光係数(mol<sup>-1</sup>1cm<sup>-1</sup>)×濃度(mol/1)×光路長(cm)

ことで濃度は、緑色系蛍光色素の蛍光体層中での濃度を示し、光路長は蛍光体層の膜厚を表わす。濃度としては、0.01mol/1~0.1mol/1の範囲が好ましく、膜厚としては、1μm~100μmの範囲が好ましい。ここで緑色系蛍光色素の役割は、有機EL素子の発光を吸収し、それをエネルギー移動、吸収再発光などの経路により効率よく橙色~赤色系蛍光色素に伝達することである。440nm~510nmにモル吸光係数が1×10°mol<sup>-1</sup>1cm<sup>-1</sup>~1×10°mol<sup>-1</sup>1cm<sup>-1</sup>の吸収を持つ緑色系蛍光色素としては代表例としてクマリン系色素を挙げることができる。具体的には、クマリン314、クマリン510、、クマリン30、クマリン334、クマリン7、クマリン6等を挙げることができる。この他にもナフタルイミド系色素なども用いることができる。また、緑色系色素、橙色系色素、赤色

系色素はあらかじめ、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂等で顔料化したものを用いてもよい。なお、これらの色素は、単独または二種以上を混ぜたものであってもよいが、緑色系有機発光素子からの発光を完全に吸収するためには440mm~5 10mmにモル吸光係数が1×10゚m០1-11cm-1の吸収を持つ色素を最低一種混合する必要がある。なお、エネルギー変換効率とは、蛍光体層に入りした緑色系発光のエネルギー(Ψιπ)と蛍光体層からの発光エネルギー(Ψιπ)と蛍光体層からの発光エネルギー(Ψιπ)の比を意味し、以下の式で表わすことができる。

エネルギー変換効率=Wout /Win

エネルギー変換効率は、蛍光体層が緑色系発光を吸収する能力と赤色系蛍光を発光する能力の積である。すなわち、赤色蛍光色素が同じ場合、緑色系発光有機EL素子の発光を吸収する能力の差がエネルギー変換効率の差となる。本発明の緑色系蛍光色素を加えた蛍光体層は、緑色系蛍光色素を加えてない蛍光体層に比べ、はるかに変 20換効率が高くなった。このことは、明らかに緑色系蛍光色素を加えることにより、蛍光体層の緑色系有機EL素子の発光を吸収する能力が向上したことを示している。

### 【0032】②バインダー樹脂

一方、バインダー樹脂は、透明な(可視光50%以上) 材料が好ましい。たとえば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニル アルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂 (高分子)が挙げられる。

【0033】なお、蛍光体層を平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィー法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。たとえば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ(メジウム)が選ばれる。たとえば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エボキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマ 40ー、ポリマーからなる組成物、また、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0034】蛍光体層が主に色素からなる場合は、所望のカラーフィルタパターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、色素とパインダー樹脂からなる場合は、蛍光色素と上記樹脂およびレジストを混合、分散または可溶化させ、スピンコート、

ロールコート、キャスト法等の方法で製膜し、フォトリ ソグラフィー法で所望のカラーフィルタパターンでパタ

ーニングしたり、印刷等の方法で所望のカラーフィルターのパターンでパターニングし、熱処理して硬化させるのが一般的である。

【0035】4 封止手段

本発明に用いられる封止手段としては特に制限はなく、 たとえば図1に示すように、ガラス基板4aと通常の接 着剤4bによるものを挙げることができる。この接着剤 としては、具体的には、アクリレート系オリゴマー、メ タクリレール系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光 硬化および熱硬化型接着剤、2-シアノアクリレートな どの湿気硬化型等のものを挙げることができる。また、 エポキシ系などの熱および化学硬化型(二液混合)を挙 げることができる。また、ホットメルト型のポリアミ ド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げるととができ る。なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合が あるので、室温から80℃までに接着硬化できるものが 好ましい。封止部分への接着剤の塗布は、市販のディス ペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印 刷してもよい。塗布後の光硬化について、可視光の場合 はよいが、紫外線では、有機EL素子が劣化する場合が ある。よって、紫外線照射時は、有機EL素子に照射さ れないようなマスキング等の方法が有効である。

【0036】5 間隙

本発明において、図1に示すように、前記透明支持基板2および封止手段4と有機EL素子1との間に設けられる間隙は、有機EL素子への衝撃または応力を緩和するために用いられる。有機EL素子上に直接、封止手段の材料をベタ塗りすると、その材料の硬化時の応力により素子が破壊されやすい。また、間隙には、空気だけでは素子が酸化される恐れがあるので、窒素、アルゴン等の不活性ガスや、フッ化炭化水素のような不活性液体を封入することが好ましい。

【0037】6 ブラックマトリックス

本発明に用いられるブラックマトリックスとしては、たとえば、下記の金属および金属酸化物薄膜、並びに黒色色素を挙げることができる。金属および金属酸化物薄膜の具体例としては、クロム(Cr)、ニッケル(N

i)、銅(Cu)等の金属およびその酸化物の薄膜を挙げることができる。上記金属および金属酸化物の混合物としては、光学濃度3.0以上(膜厚100~3000 オングストローム)のものが好ましい。

【0038】黒色色素の具体例としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラックまたはカラーフィルタの色素を混合して、黒色化したもの、またはカラーフィルタと同じように上記色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

0 【0039】金属および金属酸化物薄膜は、スパッタリ

ング法、蒸着法、CVD法等により絶縁性基板全面か、マスキングの手法により少なくとも表示部全面に成膜後、フォトリソグラフィー法によりパターニングを行って、ブラックマトリックスのパターンを形成することができる。

#### 7 カラーフィルタ

本発明に用いられるカラーフィルタとしては、緑色系~赤色系発光から色純度の高い緑色、橙色または赤色の発光を取り出す機能を有するものであれば特に制限はなく、たとえば透明樹脂に顔料を分散したものを挙げることができる。とこで、透明樹脂としては、ボリメチルメタクリレート、ボリカーボネート、ボリビニルアルコール、ボリアクリレートなどを挙げることができる。緑色の発光を取り出す場合に用いる顔料としては、緑色顔料であり、フタロシアニン系、ハロゲン系フタロシアニンが好ましく、赤色顔料としては、ベリレン顔料などが好ましい。なお、カラーフィルタを平面的に分離配置するために、透明樹脂としては、アクリル酸系、メタクリル酸系、ボリケイ皮酸ビニル系などのレジスト材により、フォトリソグラフを行なうのが好ましい。

#### [0040]

#### 【実施例】

[実施例1] 25mm×75mm×1. 1mm厚のガラ ス基板上に厚さ120nm, 20Ω/cm² の透明電極 としてのITOを10mm×60mmの範囲がベタ成膜 できるようなマスクを介して、スパッタリングにて成膜 した。(基板A)。この基板Aをイソプロピルアルコー ルで5分間超音波洗浄し、さらに波純水中で5分間超音 洗浄した後、UVイオン洗浄器(サムコインターナショ ナル社製) にて基板温度150℃で20分間洗浄した。 この基板Aを乾燥窒素ガスで乾燥して、市販の蒸着装置 [日本真空技術社製] の基板ホルダーに固定し、モリブ デン製の抵抗加熱ボードにN'N-ジフェニル-N'N ービスー (3ーメチルフェニル) ー [1, 1ービフェニ ル] -4, 4' -ジアミン(以下、TPDと略記する) を正孔注入材料として、トリス(8-キノリノール)ア ルミニウム(以下Alqと略記する)、[化6]に示す キクナリドン誘導体を発光材料として仕込み、電極の第 二金属としてAgをタングステン製フィラメントに、電 極の電子注入性金属としてMgをモリブデン製ボートに 装着した。その後、真空層を5×10<sup>-7</sup>torrまで減 圧後、10mm×60mmの範囲がベタ成膜できるよう なマスクを介して、正孔注入層、発光層、電極を積層し た。この際TPDは3.5オングストローム/秒で50 nm積層し、発光層はAlqを10オングストローム/ 秒で50nmで積層した。またとのとき前記キクナリド ン誘導体の濃度は0.32重量%であった。また発光層 上の陰極としては原子比Mg: Ag=10:1で150 nmの厚さに蒸着した。とのようにして作製した有機E L素子に直流8 Vの電圧を印加したところ20mA/c 50

18 m'の電流が流れた。発光輝度は3200cd/m', 発光効率は6.31m/W、CIE色度座標(JIS Z8701)はX=0.263、Y=0.619で緑色 の発光が出ていることを確認した。次に、この基板上の 電極(10mm×60mmの範囲)の周辺部にディスペ ンサーにて、エポキシ系二液混合型接着剤(CIBA-GEIGY社製アラルダイト)を1mm程度の幅で一部 隙間を開けて塗布した。(基板B)。次に、との基板A 上に25mm×75mm×1. 1mmのガラス基板(基 板C)を貼り合わせ、接着剤を硬化させた。次いで、窒 素雰囲気下、フッ化炭化水素(住友スリーエム社製フロ リナート) を注射針にて先の硬化した接着剤の隙間か ら、基板Cと基板Bの間隙に注入した。次いで、接着剤 の隙間にさらに先の接着剤を充填し先と同様に硬化させ た。次に、0.7重量%のクマリン6、0.7重量%の ベーシックバイオレット11および0.7重量%のロー ダミン6 [G]を含むメラミン樹脂系顔料とポリ塩化ビ ニル系樹脂(分子量20,000)をシクロヘキサノン に溶かしたインキ(粘度8,000cp、メラミン樹脂 20 の濃度は固形分中43%)を用い、基板A素子の作製さ れていない面上にスピンコートにて成膜し、風乾して1 7μm膜厚の蛍光体層を得た。このようにして、有機E L赤色発光装置を作製し、直流8Vの電圧を陽極と陰極 に印加すると蛍光体層(赤)から見える光の発光輝度は 896cd/m², 発光効率は1.81m/W、CIE 色度座標はX=0.634, Y=0.348であること を確認した。なおこの際の発光体層のエネルギー変換効 率は43%であった。以後二週間、大気下で保存しても 輝度および色度座標に全く変化がなく、劣化とともに発 30 生する黒点の発生もなく、均一な発光を維持していた他 初期300cd/m'で連続駆動させたところ、30 00時間経過後も顕著な輝度の低下はみられなかった。 【0041】 [比較例1] 実施例1で用いたガラス基板 上に実施例1と同様に、正孔注入材料としてTPD、発 光材料としてAla、 [化7] に示すジオキサジン系化 合物、電極(陰極)としてマグネシウムー銀 電極を順 次積層した。この際、Alqと前記ジオキサジン系化合 物は異なる蒸着源から体積比100:0.8で50nm の厚さに成膜した。上記の様に作製した有機EL素子に おいては、両電極間に20V印加時に0.48mA/c m'の電流が流れ、赤色発光が得られた。この際発光輝 度は980cd/m²で色純度座標はX=0.630Y = 0.334であった。以上の結果からとの素子の発光 効率は0.361m/Wであり、実施例1の素子の1. 81m/Wの1/5程度の効率であった。また、この赤 色系発光素子は、初期300cd/m²で連続駆動させ たところ200時間経過後に発光輝度は半減しており、 寿命という点でも実施例1の素子の性能には、はるかに 及ばなかった。

【0042】 [比較例2] 実施例1と同様な方法で有機

EL素子を作製した。次に、1.0重量%のベーシックバイオレット11および1.0重量%のローダミン6 [G]を含むメラミン樹脂系顔料とボリ塩化ビニル系樹脂(分子量20,000)をシクロヘキサノンに溶かしたインキ(粘度8,000cp、メラミン樹脂の濃度は固形分中43%)を用い、基板Aの素子の作製されていない面上にスピンコートにて成膜し、風乾して18.7μm膜厚の蛍光体層を得た。このようにして、有機EL赤色系発光装置を作製し、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると蛍光体層(赤)から見える光の発光輝度は608cd/m²,発光効率は1.21m/W、CIE色度座標はX=0.638,Y=0.303であることを確認した。この際の発光体層のエネルギー変換効率は36%であった。

[0043] [実施例2] 25mm×75mm×1. 1 mmのガラス基板上に厚さ120nm, 20Ω/cm<sup>2</sup> の透明電極としてのITOを10mm×60mmの範囲 において4.5mmピッチ(4.0mm、1.0mmギ ャップ) のストライプ状に成膜できるようなマスクを介 して、スパッタリングにて成膜した(基板A)。この基 20 板Aをイソプロビルアルコールで5分間超音波洗浄し、 さらに純水中で5分間超音波洗浄した後、UVイオン洗 浄器 (サムコインターナショナル社製) にて基板温度 1 50℃で20分間洗浄した。この基板Aを乾燥窒素ガス で乾燥して、市販の蒸着装置[日本真空技術社製]の基 板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ボードに N'N-ジフェニル-N'N-ビス-(3-メチルフェ ニル) - [1, 1-ビフェニル] -4, 4' ージアミン (以下、TPDと略記する)を正孔注入材料として、ト リス (8-キノリノール) アルミニウム (以下Alaと 30 略記する)、前記キクナリドン誘導体を発光材料として 仕込み、電極の第二金属としてAgをタングステン製フ ィラメントに、電極の電子注入性金属としてMgをモリ ブデン製ボートに装着した。その後、真空層を5×10 -7 torrまで減圧後、10mm×60mmの範囲がべ タ成膜できるようなマスクを介して、正孔注入層、発光 層を積層した。次に10mm×60mmの範囲において 1. 4mmのライン、3. 1mmギャップのストライプ 状に成膜できるようなマスクを介して電極のパターンを 成膜した。なおここで、電極が透明電極と直交し、か つ、それぞれの電極の端子がとれるようにマスクを配置 した。このようにして、作製した有機EL赤色発光素子 に直流8 Vの電圧を印加したところ20mA/cm²の 電流が流れ、透明電極(陽極)と電極(陰極)の交差部 分が発光し、発光輝度は3200cd/m², CIE色 度座標 (JIS Z8701) はX=0.263, Y= 0.619で緑色の発光がでていることを確認した。次 に、この基板上の電極と透明電極との交差範囲(10m m×60mmの範囲)の周辺部にディスペンサーにて、 エポキシ系二液混合型接着剤(CIBA-GEIGY社 50 0

製アラルダイト)を1mm程度の幅で一部隙間を開けて 塗布したを1mm程度の幅で一部隙間を開けて塗布し た。(基板B)。次に、この基板A上に25mm×75 mm×0. 15mmのガラス基板(基板C)を貼り合わ せ、接着剤を硬化させた。次いで、窒素雰囲気下、フッ 化炭化水素(住友スリーエム社製フロリナート)を注射 針にて先の硬化した接着剤の隙間から、基板Cと基板B の間隙に注入した。次いで、接着剤の隙間にさらに先の 接着剤を充填し先と同様に硬化させた。次に基板Aの素 子の作製されていない面上にハロゲン化銅フタシアニン 系顔料 (C. Iビグメントグリーン36)を22.5重 量%、アゾ系顔料 (C. I ピグメントイエロー83)を 7. 5重量%、ポリ塩化ビニル系樹脂(分子量20,0 00)70重量%の割合でシクロキサノンに分散したイ ンキを用いて1.4mmライン、3.1mmギャップの ストライプパターンが得られるスクリーン版を介し、有 機EL素子の電極と位置合せしてスクリーン印刷し、風 乾して1.5 µm膜厚のカラーフィルタ(緑)のパター ンを得た。次に、0.7重量%のクマリン6、0.7重 量%のベーシックバイオレット11および0.7重量% のローダミン6 [G] を含むメラミン樹脂系顔料とポリ 塩化ビニル系樹脂(分子量20,000)をシクロヘキ サノンに溶かしたインキ(粘度8,000cp、メラミ ン樹脂の濃度は固形分中43%)を用いて、1.4m m、3.1mmギャップのストライプパターンが得られ るスクリーン版を介し、カラーフィルタ(緑)のパター ンからストライプの垂直方向に1、5mmずらしてスク リーン印刷し、風乾して17.2μm膜厚の蛍光体層 (橙)を得た。次に、1.0重量%のクマリン6および 1.0重量%のローダミン6〔G〕を含むメラミン樹脂 系顔料とポリ塩化ビニル系樹脂(分子量20,000) をシクロヘキサノンに溶かしたインキ(粘度8,000 ср、メラミン樹脂の濃度は固形分中43%)を用いて 1. 4mmライン3. 1mmギャップのストライプパタ ーンが得られるスクリーン版を介し、カラーフィルタ (緑) のパターンと蛍光体層(橙)の間にスクリーン印 刷し、風乾して15.2μm膜厚のパターン蛍光体層 (赤)を得た。このようにして、有機EL多色発光装置 (ドットマトリクス型)を作製し、直流8Vの電圧を陽 40 極と陰極に印加すると、電圧を印加した透明電極(陽 極)と電極(陰極)の交差部分が発光し、カラーフィル タ(緑)から見える光の発光輝度は2600cd/m <sup>2</sup>, CIE色度座標はX=0.30, Y=0.60で緑 色の発光が出ているととを確認した。 また、蛍光体層 (橙)から見える光の発光輝度は1184cd/m², CIE色度座標はX=0.563, Y=0.436であ り、蛍光体層(赤)から見える光の発光輝度は890 c d/m<sup>2</sup>, CIE色度座標はX=0.634, Y=0. 348であることを確認した。以後、二週間、大気下で 保存しても輝度および色度座標に全く変化がなく、劣化

22

とともに発生する黒点の発生もなく、均一な発光を維持していた。

#### [0044]

【発明の効果】以上、説明したように、本発明においては、緑色系発光有機EL素子と蛍光変換法とを組み合わせることにより、赤色系発光素子を有する有機EL発光装置の高輝度、長寿命、高効率化を達成することができ、かつ多色発光装置に応用することができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL発光装置の一の実施形態を模 10 式的に示す断面図である。

【図2】本発明の有機EL発光装置の他の実施形態を模式的に示す断面図である。

#### 【符号の説明】

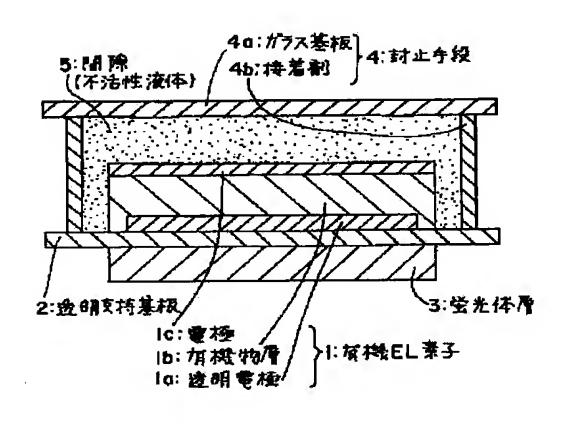
- 1 有機EL素子
- 1 a 透明電極
- 1 b 有機物層
- 1 c 電極
- 2 透明支持基板

\*3 蛍光体層

- 3 [R] 赤色変換系蛍光体層
- 3[0] 橙色変換系蛍光体層
- 4 封止手段
- 4a ガラス基板
- 4 b 接着剤
- 5 間隙
- 6 [G] 緑色カラーフィルタ
- 6 (R) 赤色カラーフィルタ
- 10 6〔〇〕 橙色カラーフィルタ
  - 7 ブラックマトリックス

【化6】

【図1】



[図2]

